

⑫

EUROPÄISCHE PATENTANMELDUNG

⑪ Anmeldenummer: 80103877.9

⑫ Anmeldetag: 08.07.80

⑪ Int. Cl.³: **C 01 F 7/30, C 01 B 13/18,**
C 04 B 35/10, C 04 B 43/00,
C 01 G 1/02

⑬ Priorität: 03.08.79 DE 2931585

⑭ Veröffentlichungstag der Anmeldung: 11.02.81
Patentblatt 81/8

⑮ Benannte Vertragsstaaten: AT BE CH DE FR GB IT LI LU
NL SE

⑯ Anmelder: Degussa Aktiengesellschaft, Degussa AG
Fachbereich Patente Rodenbacher
Chaussee 4 Postfach 1345, D-6450 Hanau 1 (Stadtteil
Wolfgang) (DE)

⑰ Erfinder: Kleinschmit, Peter, Dr., Wildaustasse 19,
D-6450 Hanau 9 (DE)
Erfinder: Schwarz, Rudolf, Dr., Taunusstrasse 2,
D-8755 Aizenau (DE)

⑱ Temperaturstabilisiertes, pyrogen hergestelltes Aluminiumoxid-Mischoxid, das Verfahren zu seiner Herstellung und Verwendung.

⑲ Temperaturstabilisiertes, pyrogen hergestelltes Aluminiumoxid-Mischoxid mit einer BET-Oberfläche von 50 bis 200 m²/g, welches 0,5 bis 20 Gew.-% Siliciumdioxid als Bestandteil enthält und aufgrund dieses Bestandteiles erst bei 1350°C einer Umwandlung in die α -Al₂O₃-Phase unterliegt.

Das temperaturstabilisierte Aluminiumoxid-Mischoxid eignet sich zur Herstellung von Wärmedämmmassen.



EP 0 023 588 A1

01

- 1 -

05

Degussa Aktiengesellschaft
6000 Frankfurt am Main 1

10

Temperaturstabilisiertes, pyrogen hergestelltes
Aluminiumoxid-Mischoxid, das Verfahren zu seiner
Herstellung und Verwendung.

15

Gegenstand der Erfindung ist ein temperaturstabilisiertes, pyrogen hergestelltes Aluminiumoxid-Mischoxid mit einer BET-Oberfläche von 50 bis 200 m²/g, welches 0,5 bis 20 Gew.-% Siliciumdioxid als Bestandteil des Mischoxides enthält.

20

In einer bevorzugten Ausführungsform enthält das Aluminiumoxid-Mischoxid 0,6 bis 14,5 Gew.-% Siliciumdioxid.

25

Das erfindungsgemäße Aluminiumoxid-Mischoxid kann bis auf 1 325°C erhitzt werden, ohne das eine Phasenumwandlung in α -Al₂O₃ erfolgt, wogegen sich nicht stabilisiertes Al₂O₃ bereits zwischen 1 175 und 1 200°C in die alpha-Modifikation umlagert.

30

Ein weiterer Gegenstand der Erfindung ist ein Verfahren zur Herstellung des temperaturstabilisierten Aluminiumoxid-Mischoxides mit einer BET-Oberfläche von

35

01

- 2 -

05 50 bis 200 m²/g, welches 0,5 bis 20 Gew.-% Silicium-
dioxid als Bestandteil des Mischoxides enthält, wel-
ches dadurch gekennzeichnet ist, daß man wasserfreies
Aluminiumchlorid verdampft, zusammen mit Luft in die
10 Mischkammer eines bekannten Brenners überführt, dort
mit Wasserstoff und Siliciumtetrachlorid in einem
derartigen Verhältnis, das das entsprechend zusammen-
gesetzte Aluminiumoxid-Mischoxid ergibt, vermischt,
das 4-Komponentengemisch in einer Reaktionskammer ver-
brennt, danach das entstandene feste Aluminiumoxid-
15 Mischoxid von den gasförmigen Reaktionsprodukten ab-
trennt und gegebenenfalls durch Erhitzen in feuchter
Luft von anhaftendem Chlorwasserstoff befreit.

20 Ein weiterer Gegenstand der Erfindung ist die Verwen-
dung des temperaturstabilisierten Aluminiumoxid-Misch-
oxides zur Herstellung von Wärmedämm-Materialien und
-Mischungen.

25 Der erfindungsgemäße Gegenstand wird anhand der fol-
genden Beispiele näher erläutert und beschrieben:

Beispiel 1 (Vergleichsbeispiel für undotiertes
Aluminiumoxid)

30 4 kg wasserfreies Aluminiumchlorid werden pro Stunde
zusammen mit 8,35 Nm³ Luft in die Mischkammer eines
Brenners bekannter Bauart übergeführt, in die gleich-
zeitig 1,4 m³/h Wasserstoff eingeleitet werden. Das
Dampf/Gasgemisch strömt mit einer Geschwindigkeit von
35 ca. 40 m/sec aus der Brennermündung und brennt in

01

- 3 -

05 eine Reaktionskammer. Danach werden die Reaktions-
 produkte in einem Kühlsystem auf etwa 130°C abge-
 kühlt, das gebildete Al_2O_3 mit einer Primärteil-
 chengröße von 7 nm in Zyklonen oder in einem Filter
 bekannter Konstruktion abgeschieden und gegebenen-
 falls nachentsäuert. Das abgeschiedene Al_2O_3 la-
 10 gert sich durch Glühung zwischen 1 175 und 1 200°C
 unter starker Vergrößerung der Primärteilchendurch-
 messer (> 100 nm) in die α -Modifikation um. Dabei
 nimmt die Schüttdichte des Materials um das 6-fache
 von 55 g/l auf 323 g/l zu. Während das ungeglühte,
 15 nicht umgewandelte Ausgangsprodukt in loser, mit
 15 g/cm³ beschwerter Schüttung eine Wärmeleitfähig-
 keit von $1,6 \times 10^{-2}$ W/m . °K bestimmt nach DIN 52 616
 aufweist, besitzt es nach der Glühung auf 1 200°C,
 d.h. nach der Phasenumwandlung, eine Leitfähigkeit
 20 von $13,4 \times 10^{-2}$ W/m . °K und ist damit als Wärmedämm-
 mittel nicht mehr einsetzbar.

Die REM-Aufnahme Nr. 1 zeigt das bei 1 175°C und die
 25 REM-Aufnahme Nr. 2 das bei 1 200°C geglühte, ver-
 größerte Produkt.

Beispiel 2

30 Man verfährt wie unter Beispiel 1 angegeben, leitet
 jedoch zusätzlich 100 g Siliciumtetrachlorid-Dampf
 in die Mischkammer des Brenners ein. Das abgetrennte
 Aluminiumoxid-Mischoxid hat nach der Abscheidung
 einen SiO_2 -Gehalt von 2,5 %, eine spezifische Ober-
 35

01

- 4 -

- 05 von $150 \text{ m}^2/\text{g}$ und einen mittleren Teilchendurchmesser von 7 nm. Bei der Glühung lagert sich dieses Produkt zwischen 1 325 und 1 350°C unter weitgehendem Verlust der spezifischen Oberfläche ($< 10 \text{ m}^2/\text{g}$) und erheblicher Teilchenvergrößerung in die α -Modifikation bzw. in Silimanit um. Die Schüttdichte beträgt vor der Glühung $53 \text{ m}^2/\text{g}$.
- 10.

- Die Bewertung der Stabilität bei der Glühung ist bei dem Aluminiumoxid-Mischoxid relativ einfach und mit geringem Aufwand verbunden. Denn die Kristallphase ändert sich innerhalb einer Spanne von 25°C, womit ein spontaner Zusammenbruch der BET-Oberfläche und ein steiler Anstieg der Teilchengröße verbunden ist.
- 15

- 20 Das Produkt, das in der beschriebenen Weise durch Dotierung mit 2,5 % Siliciumdioxid phasenstabilisiert wurde, besitzt auch nach der mehrstündigen Glühung selbst auf über 1 300°C eine relativ wenig veränderte Schüttdichte von 98 g/l. Seine Wärmeleitfähigkeit in loser Schüttung und einer Beschwerung von 15 g/cm^2 beträgt zum Beispiel nach einer 5-stündigen Glühung bei 1 300°C nur $2,6 \times 10^{-2} \text{ W/M.}^\circ\text{K}$, wodurch deutlich wird, daß es sich in diesem Temperaturbereich noch hervorragend als Wärmedämmstoff bzw. für die Herstellung von wärmedämmenden Mischungen eignet.
- 25
- 30

- Die REM-Aufnahme Nr. 3 zeigt das bei 1 300°C geglühte Produkt.
- 35

01

05

Degussa Aktiengesellschaft
6000 Frankfurt am Main 1

10

Temperaturstabilisiertes, pyrogen hergestelltes Aluminium-
oxid-Mischoxid, das Verfahren zu seiner Herstellung
und Verwendung

15

Patentansprüche

20

1. Temperaturstabilisiertes, pyrogen hergestelltes Aluminiumoxid-Mischoxid mit einer BET-Oberfläche von 50 bis 200 m²/g, welches 0,5 bis 20 Gew.-% Siliciumdioxid als Bestandteil des Mischoxides enthält.

25

2. Verfahren zur Herstellung des temperaturstabilisierten, pyrogen hergestellten Aluminiumoxid-Mischoxides mit einer BET-Oberfläche von 50 bis 200 m²/g, welches 0,5 bis 20 Gew.-% Siliciumdioxid als Bestandteil des Mischoxides enthält, dadurch gekennzeichnet, daß man wasserfreies Aluminiumchlorid verdampft, zusammen mit Luft in die Mischkammer eines bekannten Brenners überführt, dort mit Wasserstoff und Siliciumtetrachlorid in einem derartigen Verhältnis, das das entsprechend zusammengesetzte Aluminiumoxid-Mischoxid ergibt, vermischt, das 4-Komponentenge-

30

35

01

- 2. -

05

misch in einer Reaktionskammer verbrennt, danach das entsprechende feste Aluminiumoxid-Mischoxid von den gasförmigen Reaktionsprodukten abtrennt und gegebenenfalls durch Erhitzen in feuchter Luft von anhaltendem Chlorwasserstoff befreit.

10

3. Verwendung des temperaturstabilisierten, pyrogen hergestellten Aluminiumoxid-Mischoxides gemäß Anspruch 1 zur Herstellung von Wärmedämm-Materialien und -Mischungen.

15

PAT/Dr. We-Eh

1. Aug. 1979

20

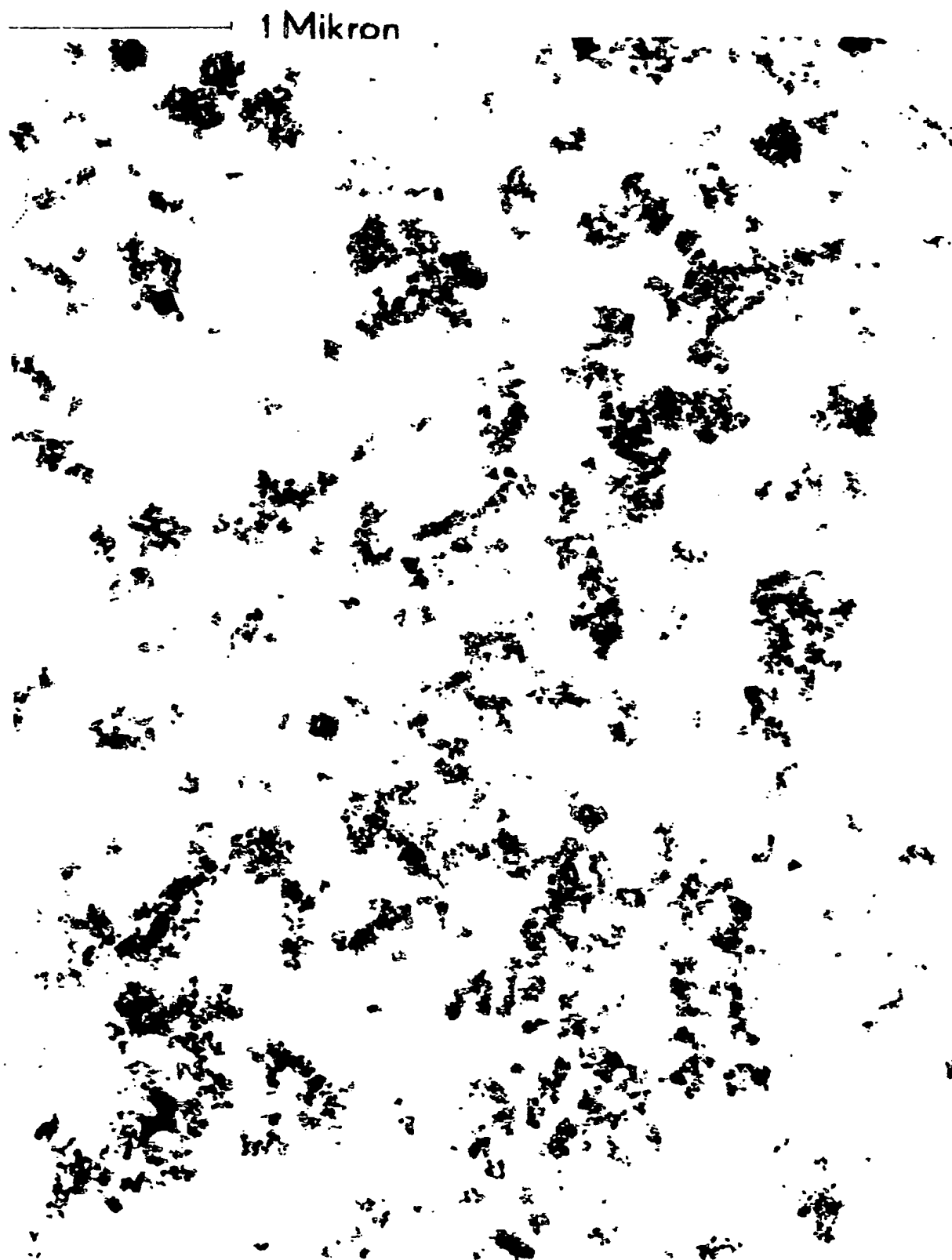
25

30

35

0023588

FIG. 1/3



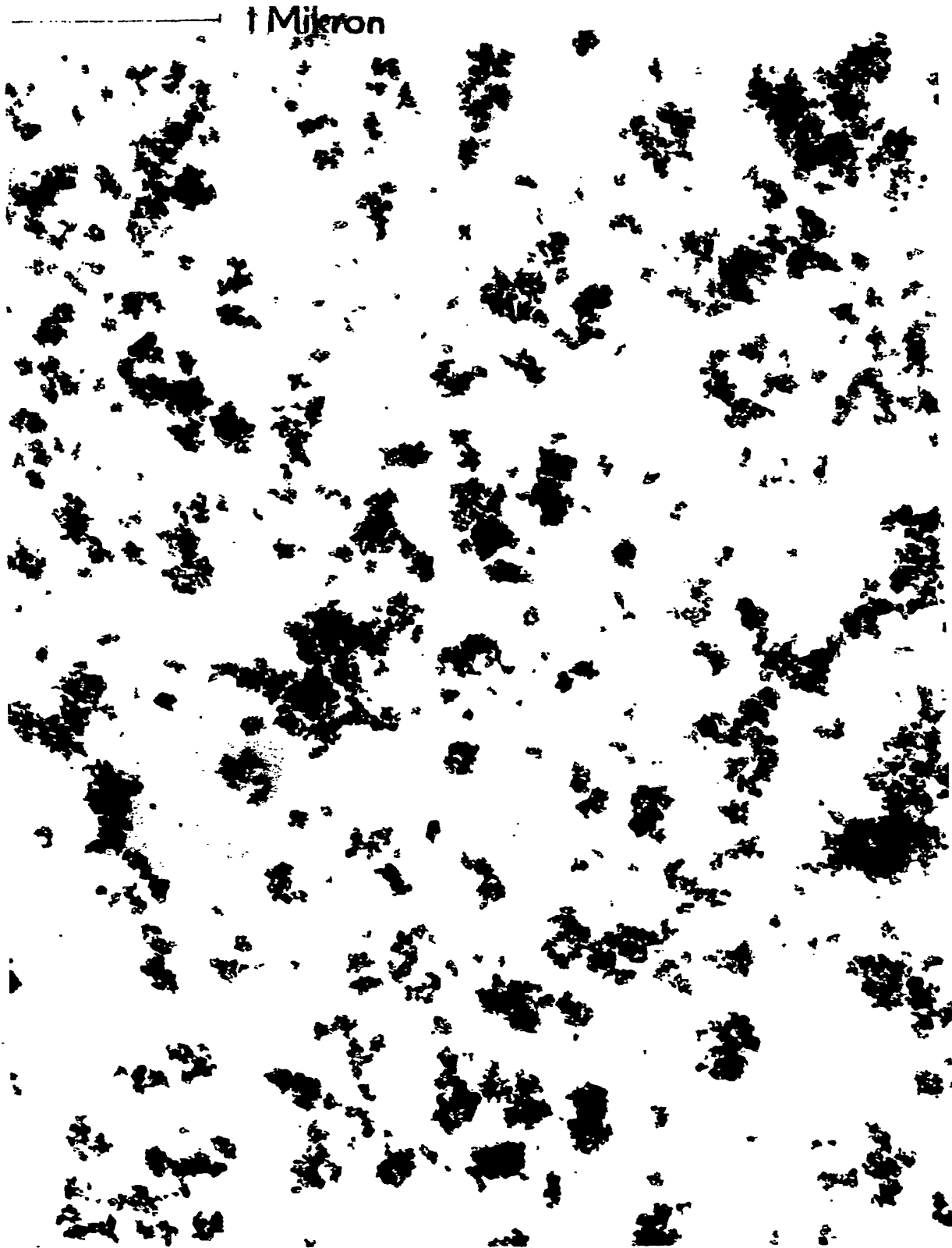
0023588

FIG. 2/3



0023588

FIG. 3/3





Europäisches
Patentamt

EUROPÄISCHER RECHERCHENBERICHT

0023588

EP 80 10 3877.9

EINSCHLÄGIGE DOKUMENTE			KLASSIFIKATION DER ANMELDUNG (Int.Cl.3)
Kategorie	Kennzeichnung des Dokuments mit Angabe, soweit erforderlich, der maßgeblichen Teile	betrifft Anspruch	
A	<u>DE - A1 - 2 533 925</u> (DEGUSSA) * Seite 6, letzter Absatz * ---	1,2	C 01 F 7/30 C 01 B 13/18 C 04 B 35/10
	<u>DE - A1 - 2 702 896</u> (CABOT CORP.) * Seite 20 * ---	1,2	C 04 B 43/00 C 01 G 1/02
	<u>DE - A - 2 048 220</u> (CABOT CORP.) * Seite 35 * ---	1,2	
	<u>DE - B - 2 036 124</u> (MICROPORE INSULATION) * Spalte 4, letzter Absatz * ---	3	C 01 B 13/00 C 01 F 7/00 C 01 G 1/02 C 04 B 35/00 C 04 B 43/00
	<u>EP - A1 - 0 013 387</u> (CONSORTIUM FÜR ELEKTROCHEMISCHE INDUSTRIE) * Seite 3, letzter Absatz * ---		
A	<u>FR - A1 - 2 399 391</u> (NOVATOME INDUSTRIES) -----		
			KATEGORIE DER GENANNTEN DOKUMENTE
			X: von besonderer Bedeutung A: technologischer Hintergrund O: nichtschriftliche Offenbarung P: Zwischenliteratur T: der Erfindung zugrunde liegende Theorien oder Grundsätze E: kollidierende Anmeldung D: in der Anmeldung angeführtes Dokument L: aus andern Gründen angeführtes Dokument &: Mitglied der gleichen Patentfamilie, übereinstimmendes Dokument
<input checked="" type="checkbox"/> Der vorliegende Recherchenbericht wurde für alle Patentansprüche erstellt.			
Recherchenort	Abschlußdatum der Recherche	Prüfer	
Berlin	31-10-1980	HÖRNER	

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☒ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☒ FADED TEXT OR DRAWING
- ☒ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☒ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☒ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.